

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ Offenlegungsschrift  
⑩ DE 195 07 606 A 1

②1 Aktenzeichen: 195 07 606.0  
②2 Anmeldetag: 4. 3. 95  
④3 Offenlegungstag: 21. 9. 95

⑤1 Int. Cl. 6: **C 08 L 51/00**  
C 08 L 53/02  
C 08 L 25/10  
C 08 L 23/08  
C 08 L 33/06  
B 32 B 27/08  
B 32 B 27/28  
// (C08L 51/00, 51:06,  
51:04) (C08L 23/08,  
23:00, 31:04) C08L  
25/16, 45/02, 93/00,  
93/04, B65D 1/10,  
85/72

DE 195 07 606 A 1

③0 Unionspriorität: ③2 ③3 ③1  
16.03.94 FR 94 03101

⑦1 Anmelder:  
Elf Atochem S.A., Puteaux, Hauts-de-Seine, FR

⑦4 Vertreter:  
Eggert, H., Dipl.-Chem. Dr., Pat.-Anw., 50935 Köln

⑦2 Erfinder:  
Beuzelin, Catherine, Bernay, FR; Bouilloux, Alain,  
Bernay, FR; Jammet, Jean-Claude, Glisolles, FR;  
Trolez, Yves, Saint-Fons, FR

⑤4 Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung und coextrudierte mehrschichtige Verbundstoffe, bei denen diese Zusammensetzung als Bindemittel für die Schichten verwendet wird

DE 195 07 606 A 1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

BUNDESDRUCKEREI 07. 95 508 038/595

14/33

## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung sowie coextrudierte mehrschichtige Verbundstoffe, bei denen diese Zusammensetzung als Bindemittel für die Schichten verwendet wird.

Die coextrudierten mehrschichtigen Verbundstoffe haben eine äußere Schicht aus Polystyrol, Polycarbonat oder Polyestern, insbesondere aus Polystyrol, und werden häufig für Behältnisse in der Lebensmittelindustrie, wie z. B. Becher und Behälter wie Joghurtbecher und Kompottbecher etc., oder für Folien, wie z. B. thermoformbare oder verschweißbare Deckel. Jedoch wird die genannte äußere Schicht in diesen Verbundstoffen im allgemeinen durch eine Copolymerschicht von Ethylen und Vinylalkohol, Polyamid, Polyesteramid, Polyolefin etc. oder aus einer Mischung dieser Polymere verdoppelt, wobei diese Polymere auf dieser Schicht eine schlechte Affinität haben, so daß zwischen beiden eine Bindemittelschicht vorhanden sein muß. Als Beispiele für mehrschichtige Verbundstoffe kann man solche mit drei Schichten (beispielsweise Polyethylen/Bindemittel/Polystyrol), solche mit fünf Schichten (beispielsweise Polyethylen/Bindemittel/Ethylen-Vinylalkohol-Copolymer/Bindemittel/Polystyrol), etc. nennen.

Die vorliegende Erfindung umfaßt gleichermaßen mehrschichtige Verbundstoffe, die durch Beschichtung unter Wärmeeinwirkung, Acrylierung, oder mittels eines Verfahrens, bei dem die das Bindemittel enthaltene mehrphasige Schicht auf einer Platte aus Poly(methylmethacrylat), Polystyrol und Poly(ethyleneterephthalat), etc. extrudiert wird, gebildet werden; das Bindemittel dient dazu, die Adhäsion auf der Platte sicherzustellen.

Zu diesem Zweck ist eine Vielzahl von Klebemittelzusammensetzungen bereits verwendet worden und in der Literatur beschrieben. Diese Zusammensetzungen enthalten zumeist ein mit Maleinsäureanhydrid und/oder Styrol gepropftes Ethylen/Vinylacetat-Copolymer in Kombination mit einer weiteren Verbindung, die insbesondere ein Copolymer aus Ethylen und nicht gepropftem Vinylacetat, Polystyrol, schlagfestem Polystyrol, Kohlenwasserstoffharz etc., ist. Unter anderem kann man die in der US-A-4,861,676 und US-A-4,861,677 beschriebenen Zusammensetzungen nennen.

Aus der FR-A-2 677 658 ist auch eine adhäsive Zusammensetzung bekannt, die durch Pffropfung einer ungesättigten Carbonsäure oder einem ihrer Derivate auf eine Mischung erhalten wird, die 40 bis 95 Gew.-% eines Ethylen/(Meth)acrylsäureester-Copolymers mit einem Gehalt an (Meth)acrylsäureester von 25 bis 45 Gew.-%, 5 bis 30 Gew.-% Polystyrol und 0 bis 30 Gew.-% eines Polymers, das ein Ethylen/Vinylacetat-Copolymer sein kann, enthält.

Obwohl einige der in der Literatur angegebenen Harze hinsichtlich der gewünschten Klebemittelwirkung genügen, muß letzteres jedoch verbessert werden. Darüber hinaus lassen sich die mehrschichtigen Verbundstoffe sehr oft schlecht schneiden. Ein solches Abschneiden, das im allgemeinen nach der Thermoverformung oder nach dem Befüllen und Verschließen der Behälter erfolgt, geschieht entweder mittels eines Metallstreifens, der auf eine ebene Fläche gedrückt wird oder durch Abscheren. Wenn das Abschneiden nicht genau stimmt, bleibt der warmverformte Gegenstand auf dem Bogen haften, aus dem es heraus verformt wurde. Dieses führt zu nicht vorhersehbaren Produktionsunterbrechungen und einem Auswechseln der Schnittwerkzeuge.

Der vorliegenden Erfindung liegt somit die Aufgabe zugrunde, Zusammensetzungen mit hervorragenden Klebemittleigenschaften, die über denen der bekannten Zusammensetzungen liegen, bereitzustellen, aber andererseits auch den Vorteil haben, daß sie wesentlich leichter geschnitten werden können als die letztgenannten.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß eine Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung bereitgestellt wird, die dadurch gekennzeichnet ist, daß sie enthält:

— mindestens ein Polymer (A), ausgewählt aus:

(A1) den Pffropfpolymeren, die aus der Pffropfung mindestens eines Pffropfmonomers resultieren, ausgewählt aus ethylenis ungesättigten Carbonsäuren, den korrespondierenden Säureanhydriden und den Derivaten dieser Säuren und Säureanhydriden auf:

(a) den schlagfesten oder kristallinen Styrolcopolymeren und -homopolymeren; und/oder

(b) den elastomeren Styroldien- oder Sequenz-Blockpolymeren und ihren Copolymeren in ihrem hydrierten Zustand, vorausgesetzt, daß (b) nicht das einzige Polymer der Mischung (A) und gegebenenfalls (B) ist;

(A2) mindestens einem wie oben definierten Copolymer (b), in Mischung mit mindestens einem Polymer (B1), das wie folgt definiert wird:

(A3) Pffropfpolymerisaten, die aus Copffropfung von mindestens einem wie oben definierten Pffropfmonomer resultiert, aufgepfropft auf eine Mischung aus:

— mindestens einem Polymer (a), das bereits oben definiert wurde; und

— mindestens einem der (c) Ethylen/Vinylacetat-Copolymere, Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere, Ethylenhomopolymere und Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymere, vorausgesetzt, daß die Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere nicht mehr als 40 Gew.-% der Mischung darstellen, die der Copffropfung unterzogen wird, um einen Polystyrolgehalt von weniger als 30 Gew.-% zu erhalten, wenn

(A3) den Hauptbestandteil der Bindemittelzusammensetzung darstellt;

(A4) den Pffropfpolymerisaten, die aus der Copffropfung von mindestens einem der oben definierten Pffropfmonomeren auf mindestens einen wie oben definierten Polymer (a), das zu mindestens einem Harz mit Klebereigenschaften (d) hinzugegeben wird, resultieren, wobei diese Pffropfpolymerisate darüber hinaus Mischungen mit mindestens einem im folgenden definierten Polymer (B1) sind; und gegebenenfalls:

— mindestens ein der folgenden Polymere:

(B) Polymere, ausgewählt aus:

(B1) den Pffropfpolymerisaten, die aus der Pffropfung von mindestens einem wie oben definierten Pffropfmo-

nomer auf ein Polymer (c) resultieren, das aus den Ethylen/Vinylacetat-Copolymeren, Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymeren ausgewählt sind; und  
 (B2) den Ethylen/ $\alpha$ -Olefin/Vinylacetat-Terpolymeren oder Alkyl(meth)acrylat-Monomeren vom Typ der vorgenannten Pfropfmonomeren; und  
 (C) die oben definierten Polymere (a), (b) und (c).

Die in den Rezepturzusammensetzungen der vorliegenden Erfindung enthaltenen gepfropften Polymere (A1), (B1), die cogeopfropften Copolymere (A3) und alle die Polymere, die ein cogeopfropftes Harz (d) enthalten, enthalten jeweils, bezogen auf das Polymer oder die Mischung der Polymeren, die der Pfropfung unterliegen, 0,005 bis 5 Gew.-% an Einheiten, die von dem oder den Pfropfmonomer(en) abgeleitet sind. Die Pfropfmonomere sind insbesondere ausgewählt aus (Meth)acrylsäure, Maleinsäure, Fumarsäure, Itaconsäure, Crotonsäure, Itaconsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid oder substituiertem Maleinsäureanhydrid, wie Dimethylmaleinsäureanhydrid; oder auch einem Salz, Amid, Imid und Ester einer ethylenisch ungesättigten Carbonsäure, wie Mono- und Dinatriummaleat, Acrylamid, Maleinimid und Diethylfumarat. Die bevorzugten sind Maleinsäureanhydrid und Maleinsäure.

Die Pfropfung kann durch jede der bekannten Methoden durchgeführt werden, bei der das oder die zu pfropfenden Polymer(e) geschmolzen werden; dazu das Pfropfmonomer, bezogen auf das oder die Polymer(e) 50 bis 20 000 ppm eines radikalischen Polymerisationsinitiators hinzugegeben werden; das Ganze so gemischt wird, daß man eine einheitliche Vermischung der Pfropfmonomeren und des Initiators in dem oder den Polymer(en) erhält; die erhaltene Mischung in einem Extruder bei einer Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes des Polymers oder der Polymeren gemischt wird; und das erhaltene Pfropfpolymer zu Formgegenständen, Granulaten oder anderen Formen extrudiert wird, die als solche oder in Mischung mit anderen Polymeren im Hinblick auf die Coextrusion von Strukturen mit mehrfachen Schichten anschließend verarbeitet werden, wie es im folgenden beschrieben wird.

Außer dieser Pfropfung in dem Extruder kann man noch als andere Möglichkeit die Pfropfung in Lösung nennen, die darin besteht, das oder die zu pfropfenden Polymere in einem Lösemittel zu lösen, und dazu das oder die Pfropfmonomer(en) und den Initiator zwecks Durchführung der Pfropfpolymerisation bei einer Temperatur zwischen 80 und 150°C hinzuzugeben.

Der freie Radikalinitiator kann aus den verschiedensten dem Fachmann bekannten Substanzklassen gewählt werden. Hierunter fallen die Peroxide, Perester, Hydroperoxide und die Diazoverbindungen. Als Peroxid kann man Dicumylperoxid, Ditertiobutylperoxid, Benzoylperoxid, Lauroylperoxid,  $\alpha,\alpha'$ -Bis(tert.-butylperoxy-m-isopropyl)benzol, 2,5-Dimethyl-2,5-di(tert.-butylperoxy)hexan, 2,5-Dimethyl-2,5-di(tert.-butylperoxy)-3-hexan nennen. Als Perester kann man tert.-Butylperbenzoat; als Hydroperoxid, tert.-Butylhydroperoxid und Cumolhydroperoxid; und als Diazoverbindung Azobisisobutyronitril nennen.

Wenn man die allgemeine Definition der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen betrachtet, ist ersichtlich, daß man die Pfropfung beispielsweise auf einem Polystyrol durchführen kann, dann gegebenenfalls das erhaltene Pfropfpolymer mit mindestens einem weiteren Polymer, das selber ebenfalls gepfropft sein kann, "verdünnen" kann. Eine andere Lösung besteht darin, die Copfropfung beispielsweise auf einem Polystyrol und einem Ethylen/Vinylacetat-Copolymer durchzuführen, was vorteilhafterweise einfach herzustellen ist; die gewünschte Verbindung kann so direkt erhalten werden, wenn der Copfropfung keine Verdünnung folgt.

Die in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung enthaltenen Polymere (a) enthalten Styrolhomo- und Copolymere (kristalline Polymere) und gummiartige Bestandteile auf Basis von Polystyrol (schlagfeste Polymere), insbesondere solchen mit hoher Schlagfestigkeit.

Als Beispiele für Styrol-Copolymere kann man Chlorpolystyrol, Poly- $\alpha$ -methylstyrol, Styrol/Chlorstyrol-Copolymere, Styrol-Propylen-Copolymere, Styrol/Butadien-Copolymere, Styrol/Isopren-Copolymere, Styrol/Vinylchlorid-Copolymere, Styrol/Vinylacetat-Copolymere, Styrol/Alkylacrylat-Copolymere (mit Methyl-, Ethyl-, Butyl-, Octyl-, Phenylacrylat), Styrol/Alkylmethacrylat-Copolymere (mit Methyl-, Ethyl-, Butyl-, Phenylmethacrylat), Styrol/Methyl- $\alpha$ -chloracrylat-Copolymere und Styrol/Acrylonitril/Alkylacrylat-Copolymere nennen. In diesen Copolymeren kann der Gehalt an Comonomeren im allgemeinen bis zu 20 Gew.-% betragen.

Die gummiartigen Polystyrol-Zusammensetzungen sind insbesondere diejenigen, die 1 bis 20 Gew.-% an von gummiartigen Zusammensetzungen abgeleitete Einheiten, insbesondere beispielsweise Butadien und Isopren, enthalten.

Die Copolymere (b) sind die genannten Sequenz- oder Blockcopolymere, die man durch Copolymerisation von Styrol und einem Dien wie Butadien und Isopren erhält. Hier kann man die Styrol/Butadien-, Styrol/Isopren-Copolymere aus zwei Blöcken und die Styrol/Butadien/Styrol- und Styrol/Isopren/Styrol-Copolymere aus drei Blöcken nennen. Ihre Herstellung erlaubt es, lineare oder verzweigte Produkte zu erhalten. Diese Copolymere können auch hydriert sein. So erhält man SEBS oder SEPS, wenn man SBS oder SIS als Ausgangsstoff für die Hydrierung verwendet. Der Styrolgehalt dieser Copolymere beträgt weniger oder gleich 50 Gew.-%. Das Styrol/Dien-Gewichtsverhältnis liegt insbesondere zwischen 10/90 und 50/50.

Die auch in der Definition der Verbindung (A3) vorkommenden Polymere (c) sind insbesondere:

- Ethylen/Vinylacetat-Copolymere mit einem Vinylacetatgehalt von im allgemeinen weniger als 60 Gew.-%, insbesondere weniger als 50 Gew.-%;
- Ethylen-Homopolymere und Copolymere von Ethylen und mindestens einem  $\alpha$ -Olefin (alle die Copolymere, die im folgenden als PE, LDPE, LLDPE, VLDPE, HDPE, und EPR bezeichnet werden). Das  $\alpha$ -Olefin hat im allgemeinen 3 bis 12 Kohlenstoffatome und ist insbesondere ausgewählt aus Propylen, 1-Buten, 4-Methyl-1-penten, 1-Hexen, 1-Octen und deren Mischungen. Der Gehalt an von Ethylen abgeleiteten Einheiten beträgt im allgemeinen mindestens 40 Gew.-%; die Dichte dieser Homo- und Copolymeren liegt

im allgemeinen zwischen 0,880 und 0,970;

— Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere, insbesondere mit einer  $C_1 - C_{12}$ -Alkylgruppe, die im allgemeinen einen (Meth)acrylatgehalt zwischen 5 und 60 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 7 und 40 Gew.-%, haben; als Alkyl(meth)acrylate kann man Methyl-, Ethyl- und Butyl(meth)acrylat nennen.

Darüber hinaus kann eine gewisse Menge mindestens eines Harzes mit Klebevermögen (d) zu mindestens einem der Polymere oder der Polymermischungen, die der Pffropfung oder der Copffropfung unterzogen werden, um ein in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung vorliegendes Copffropf- oder Pffropfprodukt zu erhalten, hinzugegeben werden.

Als in der erfindungsgemäßen Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung vorliegende Harze mit Klebeeigenschaften (d) kann man Styrolharze wie Poly- $\alpha$ -methylstyrolharze; Kolophoniumharze, Kolophoniumesterharze, aliphatische Harze, Terpenharze, Terpen/Phenol-Harze, Cumaronharze, Inden/Cumaron-Harze und aromatische Harze nennen. Der Gehalt an diesen Harzen kann nicht mehr als 40 Gew.-% der Zusammensetzung liegen. Vorzugsweise beträgt der Gehalt der Zusammensetzung an diesen Harzen mit Klebevermögen, der von dem gewünschten Fließindex abhängt, nicht mehr als 10 Gew.-%. Darüber hinaus können gewisse Harze, wie z. B. die Kolophoniumharze, aliphatische Petrolharze und Terpenharze, hydriert sein.

Die besonders interessanten erfindungsgemäßen Zusammensetzungen sind die folgenden (die Gesamtzusammensetzung beträgt jedesmal 100 Gew.-%):

— Zusammensetzungen, gebildet aus:

— 5 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 5 bis 45 Gew.-% Polystyrolen, gebildet aus mindestens einem schlagfesten oder kristallinen Polystyrol, welches gegebenenfalls mit einem schlagfesten nicht gepffropften Polystyrol gepffropft ist, letzteres kann bis zu 40 Gew.-% der Zusammensetzung betragen; und

— 30 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 55 bis 95 Gew.-% eines gepffropften Ethylen/Vinylacetat-Copolymers oder eines gepffropften Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers oder eines Terpolymers aus Ethylen, Vinylacetat oder Alkyl(meth)acrylat und Maleinsäureanhydrid; die Pffropfungen sind Pffropfungen mit Maleinsäureanhydrid;

gegebenenfalls in Mischung mit einem schlagfesten oder kristallinen Polystyrol und/oder einem Ethylen/Vinylacetat-Copolymer und/oder einem Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymer;

— Zusammensetzungen, gebildet aus dem Produkt einer Copffropfung von Maleinsäureanhydrid auf eine Mischung von:

— 5 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 5 bis 45 Gew.-%, mindestens eines schlagfesten oder kristallinen Polystyrols; und

— 30 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 55 bis 95 Gew.-% eines Ethylen/Vinylacetat-Copolymers und/oder eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers, wobei die für (A3) angegebene Bedingung erfüllt sein muß,

gegebenenfalls in Mischung mit einem schlagfesten oder kristallinen Polystyrol und/oder einem Ethylen/Vinylacetat-Copolymer und/oder einem Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymer;

— Zusammensetzungen, gebildet aus:

— 10 bis 40 Gew.-% des Produkts der Copffropfung von Maleinsäure auf eine Mischung von schlagfestem Polystyrol und einer geringeren Menge eines  $\alpha$ -Methylstyrol-Harzes mit Klebeeigenschaften; und

— 60 bis 90 Gew.-% eines gepffropften Ethylen/Vinylacetat-Copolymers oder eines gepffropften Ethylen/Methyl(meth)acrylat-Copolymers; und

— Zusammensetzungen, gebildet aus:

— 10 bis 30 Gew.-% eines Styrol/Butadien/Styrol-Blockcopolymeren; und

— 70 bis 90 Gew.-% eines auf Maleinsäureanhydrid gepffropften Ethylen/Vinylacetat-Copolymers.

Die vorliegende Erfindung betrifft gleichermaßen einen coextrudierten mehrschichtigen Verbundstoff, der mindestens einmal eine Abfolge der folgenden drei Schichten enthält:

— eine Polystyrol-, Polycarbonat- oder Polyesterschicht

— eine Schicht der vorgenannten Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung; und

— eine Schicht, gebildet aus mindestens einem Harz, ausgewählt aus den Polyolefinen, Ethylen/Vinylalkohol-Copolymeren, Polyamiden und Polyestern.

Insbesondere kann man folgende Kombinationen nennen:

PS/Bindemittel/EVOH, PS/Bindemittel/PA, PS/Bindemittel/PET, PS/Bindemittel/PO, PS/Bindemittel/EVOH/Bindemittel/PS, PS/Bindemittel/EVOH/Bindemittel/PO, PS/Bindemittel/EVOH/Bindemittel/PET, PS/Bindemittel/EVOH/PA/Bindemittel/PS, wobei PS = Polystyrol, EVOH = Ethylen/Vinylalkohol-Copolymer, PA = Polyamid, PET = Poly(ethylterephthalat) und PO = Polyolefin darstellt.

Die Polystyrole PS entsprechen den oben angegebenen.

Die Polyolefine PO umfassen hier Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymere, Ethylen/Vinylacetat-Copolymer, Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere mit einem Alkyl(meth)acrylatgehalt von weniger als 25 Gew.-%, Polyethylen mit niedriger Dichte, Polyethylen mit hoher Dichte, Polypropylen und Mischungen dieser Polymere.

Die Ethylen/Vinylalkohol-Copolymere EVOH umfassen die Copolymere von Ethylen und verseiftem Vinyl-

acetat mit einem Verseifungsgrad von mindestens 50 Mol-%. Vorzugsweise enthalten diese Copolymere mindestens 30 Mol-% von Vinylalkohol abgeleitete Einheiten, um gute Eigenschaften in bezug auf das Haftvermögen und die Gasundurchlässigkeit zu erhalten.

Die Polyamide PA sind lineare Polymere mit Amid-Säure-Bindungen, die durch Kondensation von Diaminen und Dicarbonsäuren, durch Kondensation von Aminosäuren oder durch Ringöffnung von Lactamen erhalten werden. Als Beispiele für diese Polyamide kann man Nylon 6, Nylon 6-6, Nylon 6-10, Nylon 11 und Nylon 12 nennen.

Die in den erfindungsgemäßen coextrudierten Verbundstoffen verwendeten Polyester sind Polymere, die durch Kondensation von gesättigten Dicarbonsäuren und Glykolen erhalten werden. Insbesondere kann man hier Poly(ethylterephthalat), erhalten aus Ethylenglykol und Terephthalsäure; Poly(ethylterephthalat)-Copolymere aus einer Copolymerisation mit einer gesättigten Dicarbonsäure, wie z. B. Phthalsäure, Isophthalsäure, Sebacinsäure, Adipinsäure, Azelainsäure, Glutaminsäure, Bernsteinsäure, Oxalsäure etc.; Poly(ethylterephthalat)-Copolymere aus einer Copolymerisation mit einem Diol, wie z. B. 1,4-Dimethanoldicyclohexan, Diethylenglykol, Propylenglykol, etc.; und Mischungen dieser Polymere nennen.

Die Dicke des erfindungsgemäßen Verbundstoffes beträgt 100 µm bis 3 mm, vorzugsweise 500 µm bis 2 mm. In den Fällen, wo der Verbundstoff aus 3 Schichten einer Polystyrol/Bindemittel/Dichtungsmasse (wie z. B. Polyethylen niedriger Dichte, lineares Polyethylen niedriger Dichte, Ethylen/Vinylacetat-Copolymer, etc.) besteht, beträgt die Dicke des Verbundstoffes 100 bis 1000 µm, vorzugsweise 100 bis 600 µm. Die Dicke der Polystyrolschicht des erfindungsgemäßen Verbundstoffes beträgt 30 bis 96%, vorzugsweise 60 bis 90%, der Gesamtdicke der Schicht. Die Dicke der Bindemittelzusammensetzungsschicht beträgt 1 bis 35%, vorzugsweise 2 bis 20% der Gesamtdicke des Verbundstoffes und die Dicke der Dichtungsmasse-Schicht beträgt 1 bis 35%, vorzugsweise 2 bis 20%, der Gesamtdicke des Verbundstoffes.

Der Widerstand gegen Delamination der erfindungsgemäßen Verbundstoffe beträgt mehr als 6 N/15 mm bei einer Dicke der Bindemittelschicht von 30 µm und im allgemeinen mindestens 9 N/15 mm.

Die erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzungen und mehrschichtigen Verbundstoffe, die diese Zusammensetzungen verwenden, haben ausgezeichnete Eigenschaften in bezug auf das Adhäsionsvermögen und die Abtrennungsfestigkeit der coextrudierten Schichten, sowie hervorragende Schnitteigenschaften, so daß sie zur Bearbeitung zu Behältern in der Lebensmittelindustrie etc. sehr geeignet sind.

Die folgenden Beispiele dienen der Erläuterung der Erfindung, ohne diese zu begrenzen. In diesen Beispielen beziehen sich die Prozentangaben immer auf Gewichtsprozent, sofern nichts Gegenteiliges gesagt ist. Die in diesen Beispielen bevorzugten Zusammensetzungen der Coextrusionsbindemittel gehören zu den in der folgenden Tabelle 1 angegebenen Typen II bis IX; der Typ I bezeichnet die Vergleichszusammensetzung. In dieser Tabelle, werden die Bestandteile unter Verwendung folgender Abkürzungen bezeichnet:

PS: Polystyrol

EVA-Copo: Ethylen/Vinylacetat-Copolymer

EMA-Copo: Ethylen/Methylacrylat-Copolymer

EVA/MA-Terpo: Ethylen/Vinylacetat/Maleinsäure-Anhydrid-Terpolymer

EDA/MA-Terpo: Ethylen/Butylacrylat/Maleinsäure-Anhydrid-Terpolymer

gMA: gepfropft mit Maleinsäure-Anhydrid.

Tabelle 1

Art der Coextrusions- Bindemittel- Zusammen- setzung	Bestandteile		
	(A)	(B)	(C)
I (Vergleich)		EVA-Copo gMA	
II	schlagfestes PS gMA	EVA-Copo gMA	schlagfestes PS
III	schlagfestes PS gMA	EVA-Copo gMA	
IV	SBS-Blockcopo + EVA-Copo gMA		
V	schlagfestes PS gMA	EMA-Copo gMA	
VI	schlagfestes PS gMA	EDA/MA-Terpo oder EVA/MA- Terpo	
VII	schlagfestes PS gMA + kristallines PS gMA	EVA-Copo gMA	
VIII	(schlagfestes PS + Poly( $\alpha$ -methylsty- rol-Harz) gMA	EVA-Copo gMA	
IX	(schlagfestes PS + EVA-Copo) gMA		
X	(kristallines PS + EVA-Copo) gMA		

Außerdem wurden in diesen Beispielen die folgenden bevorzugten Bestandteile eingesetzt (vergleiche erste Spalte von Tabelle 2). Der Gehalt an Hauptbestandteilen der verschiedenen gepfropften Copolymeren ist hier auf die Gewichtsverhältnisse bezogen, die durch die FT-IR-Spektroskopie bestimmt wurden; der Fließindex, ausgedrückt in g/10 min wurde gemäß der Norm ASTM D-1238 unter der Bedingung (L) (23°C/ 2,16 kg) in den Fällen von schlagfestem PS, kristallinem PS, und unter der Bedingung (E) (190°C/2,16 kg) in den Fällen von mit Maleinsäure gepfropften schlagfestem PS, mit Maleinsäure gepfropften kristallinem PS und anderen Copolymeren und Terpolymeren gemessen; die Schlagzähigkeit nach der IZOD-Methode wurde gemäß der Norm ISO 180/1A gemessen; und die VICAT-Erweichungstemperatur nach der Norm ISO 306 B gemessen.

Die Schmelzpunkte wurden nach der ATD-Methode bestimmt.

#### Bevorzugt verwendete Bestandteile

Die in den Beispielen verwendeten schlagfesten PS 1, 2, 3 und 4 sowie das kristalline PS sind handelsübliche Polystyrole, die unter der Bezeichnung "Lacqrene" von der Firma ELF ATOCHEM S.A. vertrieben werden. Ihre Eigenschaften sind in der folgenden Tabelle 2 angegeben:

Tabelle 2

PS	Lacqrène	Fließindex (g/10 min)	Schlagzähigkeit nach IZOD- Methode (kJ/m <sup>2</sup> )	VICAT Erweichungs- temperatur (°C)
schlagfest 1	8350	4,5	13	85
schlagfest 2	7240	4,5	11	87
schlagfest 3	5240	4,5	13	85
schlagfest 4	3351	4,5	8	94
kristallin	1160	2,5		98

#### Herstellung des mit Maleinsäureanhydrid gepfropften schlagfesten Polystyrols 1 (Lacqrène 8350 gMA)

In einen Extruder mit 2 gleichläufigen Schnecken vom Typ Werner 30 (12 Gänge, 30 mm Durchmesser) gibt man schlagfestes Polystyrol Lacqrène 8350 und Maleinsäureanhydrid im Verhältnis von 1,5 Gew.-%, bezogen auf schlagfestes Polystyrol. Dann injiziert man seitlich in den Extruder auf Höhe des Gangs n = 4 8500 ppm 2,5-Dimethyl-2,5-di(tert.-butylperoxy)hexan (Trigonox 101). Die abgelesene Temperatur der Gänge liegt zwischen 180°C (Gang n = 1) und 210°C (Gang n = 10). Die Temperatur der Masse beträgt ca. 200°C. Die Reste an Maleinsäureanhydrid werden durch Entgasung auf Höhe des Gangs n = 10 entfernt. Der Gesamtdurchsatz des Extruders beträgt 20 kg/h bei einer Rotationsgeschwindigkeit der Schnecken von 280 U/min. Man erhält ein schlagfestes Polystyrol, das mit 0,9% Maleinsäureanhydrid gepfropft ist und einen Fließindex von 3,2 aufweist.

#### Herstellung eines mit Maleinsäureanhydrid gepfropften schlagfesten Polystyrols 2 (Lacqrène 7240 gMA)

Man verfährt wie bei der Herstellung von schlagfestem PS 1 gMA, mit der Ausnahme, daß man schlagfestes PS 2 verwendet. Das erhaltene Polymer ist ein schlagfestes Polystyrol, das mit 0,96% Maleinsäure gepfropft ist und einen Fließindex von 3,3 aufweist.

#### Herstellung von mit Maleinsäureanhydrid gepfropften schlagfesten PS 3 (Lacqrène 5240 gMA)

Man verfährt wie bei der Herstellung von schlagfestem PS 1 gMA mit der Ausnahme, daß man schlagfestes PS 3 und 15 000 ppm Trigonox 101 verwendet. Das erhaltene Polymer ist ein schlagfestes Polystyrol, das mit 1,2% Maleinsäureanhydrid gepfropft ist und einen Fließindex von 3,1 aufweist.

#### Herstellung eines mit Maleinsäureanhydrid gepfropften kristallinen PS (Lacqrène 1160 gMA)

Man verfährt im wesentlichen wie bei der Herstellung von schlagfestem PS 1 gMA mit der Ausnahme, daß man kristallines PS Lacqrène 1160 verwendet. Der Anteil an hingegebenem Maleinsäureanhydrid beträgt 1,5 Gew.-% und man injiziert seitlich 1,1 Gew.-% Trigonox 101, bezogen auf kristallines PS. Die Rotationsgeschwindigkeit der Schnecken beträgt 130 U/min und der Durchsatz liegt bei 10 kg/h. Man erhält ein kristallines Polystyrol, das mit 0,98% Maleinsäureanhydrid gepfropft ist und einen Schmelzindex von 3,3 aufweist.

#### Herstellung eines mit Maleinsäureanhydrid gepfropften EVA-Copolymers (EVA-Copo gMA)

In den Trichter eines Extruders mit zwei gleichlaufenden Schnecken vom Typ Werner 30 (siehe oben) gibt man ein Ethylen/Vinylacetat-Copolymer (Vinylacetat-Anteil 28 Gew.-%; Fließindex: 4), bezogen auf das EVA-Copolymer 0,25% Maleinsäureanhydrid und bezogen auf das EVA-Copolymer 200 ppm 2,5-Dimethyl-2,5-di(tert.-butylperoxy)hexan (Luperox 101). Die gemessene Temperatur der Hülisen liegt zwischen 170°C (Gang n = 1) und 220°C (Gang n = 8). Die Temperatur der Masse beträgt ca. 200°C. Die Reste an Maleinsäureanhydrid werden durch Entgasung auf Höhe des Gangs n = 10 entfernt. Der gesamte Durchsatz des Extruders beträgt 15 kg/h. Man erhält ein EVA-Copolymer, das mit 2000 ppm Maleinsäureanhydrid gepfropft ist und einen Fließindex zwischen 3 und 3,5, einen Schmelzpunkt von 75°C und einen VICAT-Erweichungspunkt von 51°C hat.

#### Herstellung eines mit Maleinsäureanhydrid gepfropften EMA-Copolymers (EMA-Copo gMA)

In den Trichter eines Extruders mit 2 gleichlaufenden Schnecken des Typs Werner 30 (siehe oben) gibt man ein Ethylen/Methylacrylat-Copolymer (Methylacrylat-Anteil: 29%, Fließindex: 3,1), bezogen auf das EMA-Copoly-

mer 0,5% Maleinsäureanhydrid und bezogen auf das EMA-Copolymer 150 ppm Luperox 101. Die Temperatur der Masse beträgt ca. 200°C. Die Reste an Maleinsäureanhydrid werden durch Entgasung vollständig entfernt. Man erhält das erwartete EMA-Polymer, das mit 2300 ppm Maleinsäureanhydrid gepfropft ist und einen Fließindex von 2,5, einen Schmelzpunkt von 66°C und einen VICAT-Erweichungspunkt von weniger als 40°C hat.

Das in diesen Beispielen verwendete EVA-Copolymer, das von der Firma ELF ATOCHEM S.A. unter der Bezeichnung "EVATANE 2805" vertrieben wird, hat einen Vinylacetatgehalt von 27 bis 29 Gew.-%, einen Fließindex von 5 bis 8 g/10 min, einen Schmelzpunkt von 73°C und einen VICAT-Erweichungspunkt von 43°C.

Das in den Beispielen verwendete SBS-Blockcopolymer ist ein dreifaches lineares Styrol/Butadien/Styrol-Blockpolymer, das unter der Bezeichnung "CARIFLEX KX 139" vertrieben wird.

Das in den Beispielen verwendete Poly- $\alpha$ -methylstyrolharz ist ein Harz, das von der Firma DSM unter der Bezeichnung "KRISTALLEX F 120" vertrieben wird.

Das in den Beispielen verwendete EVA/MA-Terpolymer ist ein Ethylen/Vinylacetat/Maleinsäureanhydrid-Terpolymer mit einem Fließindex von 7 g/10 min und einem Vinylacetat-Gewichtsanteil von 26%.

Das in den Beispielen verwendete EDA/MA-Terpolymer wird unter der Bezeichnung "LOTADER 3700" von der Firma ELF ATOCHEM S.A. vertrieben und ist ein Ethylen/Butylacrylat/Maleinsäureanhydrid-Terpolymer mit einem Fließindex von 6 g/10 min und einem Butylacrylat-Gewichtsanteil von 30%.

Die folgenden Beispiele 1 bis 25 dienen der Erläuterung der Herstellung der erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzungen und der entsprechenden Vergleichszusammensetzungen (Beispiele 2 bis 25). Diese Zusammensetzungen dienen zum Verkleben einer Verbundschicht mit 5 Schichten bei einer Coextrusion bei 220°C und einer Gesamtdicke von 790  $\mu$ m und dem in der folgenden Tabelle 3 angegebenen Eigenschaften.

Tabelle 3

Schichtnummer	Zusammensetzung der Schicht	Handelsbezeichnung	Dicke ( $\mu$ m)
1	schlagfestes PS	Lacqrène 8350 (ELF ATOCHEM S.A.)	600
2	zu untersuchendes Bindemittel		30
3	EVOH-Copo (Ethylen/Vinylalkohol-Copolymer mit 62 Mol-% Vinylalkohol)	Soarnol ET	30
4	zu untersuchendes Bindemittel		30
5	PE niedriger Dichte	Lacqtène 1020 FN 24 (ELF ATOCHEM S.A.)	100

Zur Bestimmung der Adhäsion wird die Delamination in einem Laboratorium durchgeführt, das gemäß der Norm NFT 76-112 Teil 2 den Normen für ein Materialprüfungsinstitut mit folgenden Änderungen entspricht: Der Delaminationswinkel beträgt 90° anstatt 180° und die Länge der Prüfkörper beträgt 15 mm anstatt 25 mm.

Die Prüfkörper werden in der Mitte der coextrudierten Schichten in Extrusionsrichtung entnommen. Die Delaminationsgeschwindigkeit beträgt 200 mm/min. Die Bestimmung der Delaminationskraft wird mit den erhaltenen Aufzeichnungen gemäß der Norm ISO 6133 bestimmt. Die Reproduzierbarkeit des gesamten Vorganges (Coextrusion/Delamination) wird dadurch geprüft, daß man mehrere Male das gleiche Bindemittel zu verschiedenen Zeitpunkten verwendet.

#### Beispiel 1 (Vergleichsbeispiel)

Man stellt den oben beschriebenen Bogen aus 5 Schichten her, in dem man als Bindemittel das EVA-Copo GMA verwendet. Dieses Beispiel zeigt, welche Delaminationskraft erhalten werden kann.

#### Beispiel 2

In den Trichter eines Co-Kneters vom Typ Buss PR 46/70 (L/D=11) mit einer Wiederläuferschnecke, gibt man eine Mischung, die durch Trockenmischung der Granulate mit der in der Tabelle 5 angegebenen Gewichtszusammensetzung hergestellt wird. Der Gesamtdurchsatz beträgt 25 kg/h, die Rotationsgeschwindigkeit des

Kneters 200 U/min und die Temperatur der Masse 200 bis 205°C. Die Rotationsgeschwindigkeit der Widerläuferschnecken beträgt 33 U/min. In Höhe des Schachts  $n = 3$  des Cokneters legt man Vakuum an. Der erhaltene "Compound" hat einen Fließindex von 2,6. Anschließend wird er in einem Verbundstoff aus 5 Schichten verwendet, der wie im Vorangegangenen hergestellt wurde. Die Delaminationskraft ist in der Tabelle 6 angegeben.

## Beispiele 3 bis 16

Man verfährt wie im Beispiel 2 und verändert die Bestandteile in ihrer Art und ihrem Verhältnis, wie in Tabelle 5 angegeben. Die Ergebnisse sind in der gleichen Tabelle hinsichtlich der Delamination angegeben und liegen immer über denen des Vergleichsbeispiels 1.

## Beispiel 17

Man mischt wie im Beispiel 2 das EVA-Copo gMA und ein "Coprofropfpolymerisat", d. h. ein mit Maleinsäureanhydrid gepropftes schlagfestes PS 1 und Poly- $\alpha$ -methylstyrol-Harz, das wie im folgenden Beispiel hergestellt wurde. Die Ergebnisse sowie die Delaminationskraft sind in der Tabelle 5 angegeben.

## Beispiel 18

In einem Extruder mit zwei gleichlaufenden Schnecken vom Typ Werner (12 Gänge) gibt man eine Granulatmischung aus 30 Gew.-% schlagfestem PS 4 und 70 Gew.-% EVA-Copo, 0,5 Gew.-% Maleinsäureanhydrid und 150 ppm Luperox 101 auf einen pulverförmigen Polyethylenträger. Die Mischung wird mit einem Durchsatz von 15 kg/h (200 U/min) und einer Temperatur der Masse von ca. 210°C extrudiert. Die flüchtigen Bestandteile (nicht gepropfte Maleinsäure und Peroxidreste) werden nacheinander auf Höhe des Gangs  $n = 10$  des Extruders entgast. Das am Ausgang des Extruders erhaltene "Co-Pfropfpolymerisat" hat einen Fließindex von 2,2 und einen Pfropfanteil von 1600 ppm gepropften Maleinsäureanhydrid. Das so erhaltene Bindemittel wird zu einem Verbundstoff aus 5 Schichten hinzugegeben und danach wie im Beispiel 2 angegeben coextrudiert. Die Delaminationskraft ist in der Tabelle 5 angegeben.

## Beispiele 19 bis 25

Man verfährt wie in Beispiel 18 aber mit den in den folgenden Tabellen 4 und 5 angegebenen Abwandlungen. Die Tabelle 5 gibt die Zusammensetzung und die Ergebnisse in bezug auf die Delaminationskraft an.

Tabelle 4

Bspl.	hinzugegebenes Maleinsäure-Anhydrid (%)	hinzugegebene Menge an organischem Peroxid (ppm)	Extrusionsdurchsatz (kg/h)	Fließindex des erhaltenen Copfropfpolymerisats (g/10 min) (190 °C/2,16 kg)	Pfropfanteil (ppm MA)
19	0,5	150	15	1,8	2500
20	0,375	114	20	2,8	2000
21	0,5	150	15	3,8	3300
22	0,5	150	15	4	2700
23	0,5	150	15	3,6	4000
24	0,5	150	15	3	3300
25	0,375	114	20	3,3	1700

Tabelle 5

Typ	Extrusionsbindemittel- bestandteile	Art der Zusammensetzung																																																	
		I					II					III					IV					V					VI					VII					VIII					IX					X				
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25																									
	Bspl.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25																									
	Vergl.																																																		
A1	schlagfestes PS gMA (Lacqrène 8350 gMA)		5	25	5	10		20	25			30		30	30	30	15																																		
A1	schlagfestes PS 2 gMA (Lacqrène 7240 gMA)								25																																										
A1	schlagfestes PS 3 gMA (Lacqrène 5240 gMA)						10				25																																								
A1	kristallines PS gMA (Lacqrène 1160 gMA)																15																																		
B1	EVA-Copo gMA	100	70	70	60	90	90	80	72	72	70	80					70	70																																	
B1	EMA-Copo gMA													70																																					
B2	EVA/MA-Teipo														70																																				
B2	EDAMA (Lotader 3700)																70																																		
a	schlagfestes PS 1 (Lacqrène 8350)		25	5	35													27*			20*	10*	30*	40*																											
a	schlagfestes PS 4 (Lacqrène 3351)																		30*	40*	15*																														
a	kristallines PS (Lacqrène 1160)																									15*																									
b	SBS-Blockcopo (Carillex KX 139)												20																																						
c	EVA-Copo (Evalane 2805)																			70*	60*	85*	90*	70*	60*	85*																									
d	Poly- $\alpha$ -methylstyrolharz (Kristallex F 120)																	3*																																	
Delaminations- kraft (in N/15 mm)	10 + 8 Tage	7,22- 7,82	18,67- 19,62	12,75- 19,62	22,06- 18,72	10,79- 7,33	16,61- 16,31	18,63- 18,05	19,31- 21,56	21,56- 24,12	11,17- 10,98	9,81- 12,75	9,41- 9,81	6,18- 6,66	9,81- 8,82	10,79- 7,84	7,16- 7,84	14,71- 11,77	15,15- 22,01	8,21- 8,44	15,20- 9,32	16,07- 14,61	15,24- 13,73	17,88- 17,67	14,07- 14,42	7,84- 6,86- 17,65																									
	10 + 1 Monat	6,65- 7,37	19,62- 20,33	18,72- 20,29	18,72- 20,29	7,33- 9,81	16,31- 16,65	18,05- 19,32	21,56- 22,75	24,12- 21,48	10,98- 10,81	12,75- 4,41	9,81- 10,7	6,86- 9,41	8,82- 7,84	7,84- 6,86	7,84- 9,16	11,77- 12,75	22,01- 23,74	8,44- 9,84	9,32- 15,08	14,61- 15,16	13,73- 13,27	17,67- 19,70	14,42- 14,98	6,86- 17,65																									
	10 + 2 Monate	6,51- 7,35	18,85- 20,33	20,29- 20,29	20,29- 20,29	9,81- 9,81	16,65- 21,09	19,32- 21,09	22,75- 21,48	21,48- 21,48	10,81- 4,41	4,41- 10,7	10,7- 10,7	9,41- 9,41	7,84- 6,86	6,86- 9,16	9,16- 9,16	12,75- 12,75	23,74- 23,74	9,84- 15,08	15,08- 15,16	13,27- 13,27	19,70- 14,98	14,98- 18,89																											

\* Coproplung - Coproplungsprodukt der Verbindung A4 in Beispiel 17

\* Coproplung - Verbindung A3 in den Beispielen 18 bis 25

## Patentansprüche

1. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung, **dadurch gekennzeichnet**, daß sie enthält:
  - mindestens ein Polymer (A), ausgewählt aus:
    - (A1) den Pffropfpolymeren, die aus der Pffropfung mindestens eines Pffropfmonomers resultieren, ausgewählt aus ethylenisch ungesättigten Carbonsäuren, den korrespondierenden Säureanhydriden und den Derivaten dieser Säuren und Säureanhydriden auf:
      - (a) den schlagfesten oder kristallinen Styrolcopolymeren und -homopolymeren; und/oder
      - (b) den elastomeren Styroidien- oder Sequenz-Blockpolymeren und ihren Copolymeren in ihrem hydrierten Zustand, vorausgesetzt, daß (b) nicht das einzige Polymer der Mischung (A) und gegebenenfalls (B) ist;
    - (A2) mindestens einem wie oben definierten Copolymer (b), in Mischung mit mindestens einem Polymer (B1), das wie folgt definiert wird:
    - (A3) Pffropfpolymerisaten, die aus Copffropfung von mindestens einem wie oben definierten Pffropfmonomer resultiert, aufgepfropft auf eine Mischung aus:
      - mindestens einem Polymer (a), das bereits oben definiert wurde; und
      - mindestens einem der (c) Ethylen/Vinylacetat-Copolymere, Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere, Ethylenhomopolymere und Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymere, vorausgesetzt, daß die Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere nicht mehr als 40 Gew.-% der Mischung darstellen, die der Copffropfung unterzogen wird, um einen Polystyrolgehalt von weniger als 30 Gew.-% zu erhalten, wenn (A3) den Hauptbestandteil der Bindemittelzusammensetzung darstellt;
      - (A4) den Pffropfpolymerisaten, die aus der Copffropfung von mindestens einem oben definierten Pffropfmonomeren auf mindestens einen wie oben definierten Polymer (a), das zu mindestens einem Harz mit Klebereigenschaften (d) hinzugegeben wird, resultiert, wobei diese Pffropfpolymerisate darüber hinaus Mischungen mit mindestens einem im folgenden definierten Polymer (B1) sind; und gegebenenfalls:
        - mindestens einem der folgenden Polymere:
    - (B) Polymere, ausgewählt aus:
      - (B1) den Pffropfpolymerisaten, die aus der Pffropfung von mindestens einem wie oben definierten Pffropfmonomer auf ein Polymer (c) resultiert, das aus den Ethylen/Vinylacetat-Copolymeren, Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymeren, Ethylenhomopolymeren und Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymeren ausgewählt ist; und
      - (B2) den Ethylen/ $\alpha$ -Olefin/Vinylacetat-Terpolymeren oder Alkyl(meth)acrylat-Monomeren vom Typ der vorgenannten Pffropfmonomeren; und
      - (C) die oben definierten Polymere (a), (b) und (c).
  - 2. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß das in die Formulierung eingebrachte Pffropf- oder Copffropfpolymer jeweils 0,005 bis 5 Gew.-% von dem oder den Pffropfpolymer(en) abgeleitete Einheiten enthält.
  - 3. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 und 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Pffropfmonomere ausgewählt sind aus (Meth)acrylsäure, Maleinsäure, Fumarsäure, Itaconsäure, Crotonsäure, Itaconsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid oder substituiertem Maleinsäureanhydrid wie Dimethylmaleinsäureanhydrid; oder auch einem Salz, Amid, Imid und Ester einer ethylenisch ungesättigten Carbonsäure, wie Mono- und Dinatriummaleat, Acrylamid, Maleinimid und Diethylfumarat; und insbesondere Maleinsäure und Maleinsäureanhydrid.
  - 4. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Polymere (a) ausgewählt sind aus Styrolhomopolymeren, Styrolcopolymeren und Styrolpolymeren mit gummiartigen Bestandteilen, die 1 bis 20 Gew.-% von gummiartigen Bestandteilen abgeleitete Einheiten enthalten.
  - 5. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Blockcopolymeren ausgewählt sind aus Styrol/Butadien-Copolymeren, Styrol/Isopren-Copolymeren, Styrol/Butadien/Styrol-Copolymeren, Styrol/Isopren/Styrol-Copolymeren wobei die Styrol/Dien-Gewichtsverhältnisse zwischen 10/90 und 50/50 liegen.
  - 6. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Ethylen/Vinylacetat-Copolymere (c) einen Vinylacetatgehalt von weniger als 60 Gew.-% haben.
  - 7. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, daß mindestens ein Harz mit Klebereigenschaften (d) zu mindestens einem der Polymere oder Polymerenmischungen hinzugegeben wird, das einer Pffropfung oder einer Copffropfung unterzogen wurde, um ein in die Zusammensetzung einzubringendes Pffropf- oder Copffropfprodukt zu bilden.
  - 8. Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet**, daß das Harz mit Klebereigenschaften (d) ausgewählt ist aus  $\alpha$ -Methylstyrolharzen, Kolophoniumharzen, die gegebenenfalls hydriert sind, Kolophoniumesterharzen, aliphatischen Harzen, die gegebenenfalls hydriert sind, Terpenharzen, die gegebenenfalls hydriert sind, phenolischen Terpenharzen, Cumaronharzen, Inden-Cumaronharzen und aromatischen Harzen.
  - 9. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet**, daß der Gehalt an Harz(en) mit Klebereigenschaften 40 Gew.-%, insbesondere 10 Gew.-%, der Gesamtzusammensetzung nicht übersteigt.
  - 10. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, **dadurch gekennzeichnet**, daß sie gebildet wird aus:
    - 5 bis 70 Gew.-% Polystyrol, das aus mindestens einem schlagfesten oder kristallinen Polystyrol gebildet ist, welches gegebenenfalls mit einem schlagfesten nicht gepffropften Polystyrol gepffropft ist,

letzteres kann bis zu 40 Gew.-% der Zusammensetzung betragen; und  
 — 30 bis 95 Gew.-% eines gepfropften Ethylen/Vinylacetat-Copolymers oder eines gepfropften Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers oder eines Ethylen/Vinylacetat- oder Alkyl(meth)acrylat/Maleinsäureanhydrid-Terpolymers; die Pfropfungen sind Pfropfungen mit Maleinsäureanhydrid, gegebenenfalls in Mischung mit einem schlagfesten oder kristallinen Polystyrol und/oder einem Ethylen/Vinylacetat-Copolymer und/oder einem Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymer.

11. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß sie aus dem Copfropfprodukt von Maleinsäureanhydrid auf eine Mischung aus:

- 5 bis 70 Gew.-% mindestens eines schlagfesten oder kristallinen Polystyrols; und
- 30 bis 95 Gew.-% eines Ethylen/Vinylacetat-Copolymers und/oder eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers, wobei die in Anspruch 1 angegebene Bedingung gemäß der Definition von (A3) erfüllt ist, gebildet wird, gegebenenfalls in Mischung mit einem schlagfesten oder kristallinen Polystyrol und/oder eines Ethylen/Vinylacetat-Copolymers und/oder eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers.

12. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß sie gebildet wird aus:

- 10 bis 40 Gew.-% des Copfropfprodukts von Maleinsäureanhydrid auf eine Mischung aus schlagfestem Polystyrol und einer geringen Menge eines  $\alpha$ -Methylstyrolharzes mit Klebereigenschaften; und
- 60 bis 90 Gew.-% eines gepfropften Ethylen/Vinylacetat-Copolymers oder eines gepfropften Ethylen/Methyl(meth)acrylats.

13. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß sie gebildet wird aus:

- 10 bis 30 Gew.-% eines Styrol/Butadien/Styrol-Blockcopolymers; und
- 70 bis 90 Gew.-% eines schlagfesten Polystyrols, das mit Maleinsäureanhydrid gepfropft ist.

14. Coextrudierter mehrschichtiger Verbundstoff, dadurch gekennzeichnet, daß er mindestens einmal eine Abfolge der folgenden drei Schichten enthält:

- eine Polystyrol-, Polycarbonat- oder Polyesterschicht,
- eine Schicht der Coextrusions-Bindemittelzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 13; und
- eine Schicht, gebildet aus mindestens einem Harz ausgewählt aus den Polyolefinen, Ethylen/Vinylalkohol-Copolymeren, Polyamiden und Polyestern.

15. Coextrudierter mehrschichtiger Verbundstoff nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß er eine der folgenden Kombinationen entspricht:

PS/Bindemittel/EVOH, PS/Bindemittel/PA, PS/Bindemittel/PET,  
 PS/Bindemittel/PO, PS/Bindemittel/EVOH/Bindemittel/PS,  
 PS/Bindemittel/EVOH/Bindemittel/PO,  
 PS/Bindemittel/EVOH/Bindemittel/PET,  
 PS/Bindemittel/EVOH/PA/Bindemittel/PS; wobei  
 PS = Polystyrol; EVOH = Ethylen/Vinylalkohol-Copolymer,  
 PA = Polyamid; PET = Poly(ethylenterephthalat);  
 PO = Polyolefin.